

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/000210

International filing date: 12 January 2005 (12.01.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2004-010449  
Filing date: 19 January 2004 (19.01.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 03 March 2005 (03.03.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

13.01.2005

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2004年 1月19日  
Date of Application:

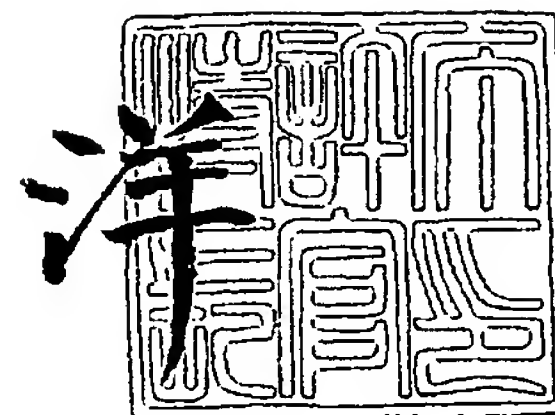
出願番号 特願2004-010449  
Application Number:  
[ST. 10/C]: [JP2004-010449]

出願人 独立行政法人科学技術振興機構  
Applicant(s):

2005年 2月17日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小川



【書類名】 特許願  
【整理番号】 PS04-1614  
【あて先】 特許庁長官殿  
【発明者】  
【住所又は居所】 千葉県松戸市西馬橋 2-40-21 クレージュIII105号  
室  
【氏名】 村上 英利  
【発明者】  
【住所又は居所】 東京都府中市美好町 3-40-8  
【氏名】 渋谷 憲悟  
【発明者】  
【住所又は居所】 東京都品川区東品川 2-5-6-905  
【氏名】 斎藤 晴雄  
【発明者】  
【住所又は居所】 宮城県仙台市青葉区川内元支倉 35番地 川内住宅10-107  
【氏名】 浅井 圭介  
【発明者】  
【住所又は居所】 千葉縣市川市南大野 1-45-1-316  
【氏名】 本多 庸郎  
【特許出願人】  
【識別番号】 503360115  
【氏名又は名称】 独立行政法人 科学技術振興機構  
【代理人】  
【識別番号】 100110249  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 下田 昭  
【選任した代理人】  
【識別番号】 100113022  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 赤尾 謙一郎  
【手数料の表示】  
【予納台帳番号】 205203  
【納付金額】 21,000円  
【提出物件の目録】  
【物件名】 特許請求の範囲 1  
【物件名】 明細書 1  
【物件名】 図面 1  
【物件名】 要約書 1

【書類名】 特許請求の範囲

【請求項 1】

シンチレータとして塩化バリウム ( $\text{BaCl}_2$ ) 結晶を用い、シンチレータからの受光に光電子増倍管を用いた放射線検出装置であって、該シンチレータからの発光として波長が 2 5 0 ~ 3 5 0 nm の光を用い、該シンチレータを低湿度雰囲気置くことを特徴とする放射線検出装置。

【請求項 2】

ガンマ線検出のための請求項 1 に記載の放射線検出装置。

【書類名】明細書

【発明の名称】放射線検出装置

【技術分野】

【0001】

この発明は、放射線、特にガンマ線の検出装置に関し、更に詳細には時間分解能の極めて早いガンマ線検出装置に関する。

【背景技術】

【0002】

従来のガンマ線検出器、特に陽電子消滅ガンマ線 (0.511MeV) の寿命測定 (Positron Annihilation Lifetime; PAL) においては、これまで必ずしも十分な時間分解能が得られているとはいえなかった。実際の応用において時間分解能は非常に重要である。例えば、医療におけるPET (Positron Emission Tomography: 陽電子断層撮影) の時間分解能が向上することによって、時間情報から陽電子の位置の検出精度が上がり、その結果、測定時間の短縮・線源強度の低減などがもたらされ、被験者の負担低減につながる。また材料科学においては、陽電子の寿命測定は格子欠陥の検出に利用されているので、時間分解能の向上は検出感度の向上につながる。

【0003】

このようなガンマ線検出器の時間分解能を向上させるためには、従来よりも減衰時間が短い蛍光成分を持つシンチレーター結晶が不可欠であるが、これまで実用化されているシンチレーター結晶の多くは、発光量子収率が大きい蛍光の減衰時定数が数百ナノ秒と遅いもの (NaI(Tl)、CsI(Tl)、CsI(Tl)、CsI(Na)、BGO、CdWO<sub>4</sub> など)、又は減衰時定数が数ナノ秒ないし30ナノ秒程度と速いが発光量子収率が小さいもの (CsF、CeF<sub>3</sub>、CsI、有機シンチレーターなど) である。

実用化されているシンチレーターの中ではフッ化バリウム (BaF<sub>2</sub>) のみが唯一サブナノ秒の減衰時定数 (600ピコ秒) を持っているが (非特許文献1)、その速い蛍光成分の波長は225nmと極めて短く、高価な紫外用の検出器を用いなければならないなど、その取り扱いは大変難しい。

【0004】

一方、BaCl<sub>2</sub>についてX線照射後のケイ光寿命が測定されたことはあったが (非特許文献2)、放射線測定分野においては高速でかつ発光量の大きい材料が求められてきたため、またこの材料には潮解性があり使用が困難であったため、シンチレータの材料としてはほとんど検討が行われてこなかった。

また、本発明者らは、理想的なシンチレーターを見出すために、高い発光強度と短い減衰時定数を併せ持ち、かつ安価な検出器が使える可視光域で発光する材料の研究を行ってきた (非特許文献3、特許文献1、特願2003-106277)。

【0005】

【特許文献1】特開2003-215251

【非特許文献1】M. Laval et al., Nucl. Instrum. Meth., 206(1983)169

【非特許文献2】S. E. Derenzo et al., IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record 91CH3100-5, vol.1, pp.143-147, 1991

【非特許文献3】H. Saito et al., Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A487(2002)612-617

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

本発明の目的は、発光効率が高く、減衰時間が短い蛍光成分を持ち、かつその発光波長が可視光域、もしくはそれにより近いところにあるシンチレーター結晶、並びにそれを用いた高い時間分解能を持つ放射線検出装置を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0007】

シンチレーター結晶として、塩化バリウム ( $\text{BaCl}_2$ ) を用いる。

即ち、本発明は、シンチレータとして塩化バリウム ( $\text{BaCl}_2$ ) 結晶を用い、シンチレータからの受光に光電子増倍管を用いた放射線検出装置であって、該シンチレータからの発光として波長が250～350nmの光を用い、該シンチレータを低湿度雰囲気置くことを特徴とする放射線検出装置である。

【発明を実施するための最良の形態】

【0008】

本発明のシンチレーター結晶を製造する方法として、大型の単結晶を作製できる垂直ブリッジマン法が適切である。これは、結晶の原料を入れた縦長のるつぼを、所定の温度勾配を持つ縦型炉（結晶成長炉）の中でゆっくり降下させ、ルツボ内の融液の下端から固化させて結晶を得ることができる。

塩化バリウム ( $\text{BaCl}_2$ ) は、水に溶けやすく (36g/100g  $\text{H}_2\text{O}$  at 20℃)、融点962℃、単斜晶系、923℃で相転移して立方晶になる。通常二水和物として知られ、121℃で無水物になる。従って、できるだけ含水の少ないものが好ましい。

【0009】

塩化バリウム ( $\text{BaCl}_2$ ) 結晶は潮解性があるため、このシンチレータを低湿度雰囲気に置く必要がある。低湿度雰囲気とするためには、例えば、この結晶を密閉環境に置き真空に保つか、若しくはそこを窒素や希ガス等の不活性ガスで充填させたり、又は不活性ガスをフローさせてもよい。また、短時間の測定の場合には、単にその近傍に吸湿剤を置くだけでもよい。

【0010】

塩化バリウム ( $\text{BaCl}_2$ ) 結晶は放射線、特にガンマ線を照射すると波長300nm近傍、即ち250～350nmの光を放射するため、この放射光を受光するために光電子増倍管を用いる。

光電子増倍管は、光を電子に変換するための光電面と、その電子を増幅する増幅部から構成される。MCP内蔵光電子増倍管を用いてもよい。MCP（マイクロチャンネルプレート）は、ガラスに微細な穴（チャンネル）が空いている素子であり、この両面に電圧（数kV）をかけると、負電位の側から入射した電子がチャンネルの壁にぶつかりながら2次電子を出して増幅される。MCP内蔵光電子増倍管は、このような素子を内蔵することにより、シングルフォトンの検出を可能とし、応答時間を高速にした光電子増倍管である。このようなMCP内蔵光電子増倍管は市販されており、例えば、浜松ホトニクス株式会社からR3809UシリーズやR5916Uシリーズとして入手可能である。

【0011】

$\text{BaCl}_2$ の高速な発光成分は、波長300nm近傍に現れる。 $\text{BaF}_2$ シンチレーターではその速い発光成分が225nmと極めて短く、使用する光電子増倍管は、窓材に高価なUVガラスや合成石英を使用したものでなければならないが、300nmであればより一般的に用いられているホウケイ酸ガラスでも使用が可能である。また、光電面材料でも、225nm近辺でも感度が高いものは限られてくるが、300nmであれば近紫外～可視域でよく使われる、高感度・低暗電流のバイアルカリを用いた光電子増倍管を使用することが可能である。そのため $\text{BaCl}_2$ は、 $\text{BaF}_2$ にくらべて使用可能な光電子増倍管の種類が多い。また $\text{BaF}_2$ ほどではないにしても、十分に短い減衰時定数を持つため、これを用いることで高い時間分解能を持った放射線検出装置の実現が期待できる。

【0012】

本発明の放射線検出装置は、上記の塩化バリウム結晶と光電子増倍管以外に、これら部品を結合して、放射線を検出するために適宜必要なスペックを有する装置を組合わせて用いてもよい。例えば、塩化バリウム結晶とMCP内蔵光電子増倍管にデジタルオシロスコープを組み合わせたか、このデジタルオシロスコープを外部トリガ回路で動作させるよう構成してもよい。更に、検出された波形の処理のために適宜公知の装置を用いることができる。

【0013】

従来は同時計数法を用いた放射線時間計測には、コンスタントフラクションデスクリミ



ネータ (CFD)、時間一振幅変換回路 (TAC)、マルチチャンネルアナライザ (MCA) を用いていたが、本発明では上記の装置の代わりに、光電子増倍管から出力される波形を高速なデジタルオシロスコープで保存・数値化し、パーソナルコンピュータに転送して時間差の解析を行う。これは、我々が開発した手法である (非特許文献 1)。これにより、極めて高い時間分解能の測定が可能となる。

#### 【0014】

この放射線検出装置の測定対象は、陽電子消滅ガンマ線が好ましく、線源は PET に使用されるものとして、C-11、N-13、O-15、F-18、陽電子寿命測定に使用されるものとして Na-22、Ge-68 などが挙げられる。

#### 【0015】

以下、実施例にて本発明を例証するが本発明を限定することを意図するものではない。

#### 製造例 1

塩化バリウム ( $\text{BaCl}_2$ ) 結晶を以下の手順で作成した。

内径 60 mm のカーボンルツボに  $\text{BaCl}_2$  (Aldrich 製、純度 99.999%、成分比  $\text{Ba}:\text{Cl} = 1:2$ 、結晶構造 立方晶系、比重 3.096、屈折率 1.646) を 850 g 入れ、炉にセットする。ロータリーポンプと油拡散ポンプを用いて炉内を真空状態にする (真空度:  $\sim 10^{-5}$  Pa)。

これをヒーターで加熱し低温乾燥 (120℃、24 時間) する。この炉を温度昇温プログラムに従って 970℃ まで昇温後、24 時間保持する。ルツボを引き下げ速度 0.3 mm/h で、105 mm 引き下げる (約 350 時間)。室温まで冷却し (96 時間)、徐冷後、取り出し、成形・研磨する。

#### 【0016】

このようにして得た  $\text{BaCl}_2$  結晶にシリコングリスを全面に塗布したのち、光電子増倍管への貼り付け面以外を遮光テープで覆ってから、直接光電子増倍管 (浜松ホトニクス H3378) の受光面に貼り付け、放射線検出装置とした。 $\text{BaCl}_2$  にはアルミ製反射板をかぶせて発光を効率よく光電子増倍管に導くようにした。また測定は短時間であったので、 $\text{BaCl}_2$  近傍に吸湿剤を置いた。

一方、比較のためシンチレーター結晶にフッ化バリウム (応用光研工業株式会社) を用いた同様の放射線検出装置を用意した。

これらシンチレーター結晶である  $\text{BaCl}_2$  は 6 mm 角の立方体、 $\text{BaF}_2$  は直径 30 mm、厚さ 10 mm の円柱状であった。

#### 【実施例 1】

#### 【0017】

図 1 に示す測定系において、一方の放射線検出装置にシンチレーター結晶として塩化バリウム ( $\text{BaCl}_2$ ) 結晶を用いたものを用い、もう一方にはフッ化バリウムを用いたものを用いた。

線源として 68 Ge を用いて、陽電子消滅ガンマ線 (0.511 MeV) の時間差測定を行った。光電子増倍管からの出力は 2 つに分岐させ、一方を高速なデジタルオシロスコープ (LeCroy WavePro 7100) に直接入力し、もう一方を波高弁別器、及びコインシデンス回路に入力し、オシロスコープヘトリガーをかけた。測定データはパーソナルコンピュータに取り込み、解析を行った。

図 2 に本装置で行った陽電子消滅ガンマ線の時間差測定の結果を示す。この図から、時間差測定の時間分解能 (グラフの半値全幅) は 200 ps であった。

#### 【実施例 2】

#### 【0018】

次に、実施例 1 の測定結果から、 $\text{BaCl}_2$  シンチレーターと  $\text{BaF}_2$  シンチレーターの測定波形の立ち上がり時間を比較した。その結果を図 3 に示す。

$\text{BaF}_2$  では 900 ~ 1300 ps の間に分布するが、 $\text{BaCl}_2$  ではこれより若干遅く 1000 ~ 1600 ps の間に分布することがわかった。このように  $\text{BaCl}_2$  は、 $\text{BaF}_2$  にせまる時間応答性を持つシンチレーター結晶であることがわかる。

#### 【0019】

比較例 1

上記実施例 1 との比較のため、2つのシンチレーター両方にBaF<sub>2</sub>を用いて同様の実験を行った。BaF<sub>2</sub>シンチレーターはともに直径3.0mm、厚さ1.0mmの円柱状のものである。得られた結果を図4に示す。このグラフより、時間分解能は174 psであった。

## 【0020】

以上のように、BaCl<sub>2</sub>シンチレーターとデジタルオシロスコープを組み合わせた時間差測定を行えば、実用化されている既存のシンチレーターのなかで最も速い減衰定数を持つBaF<sub>2</sub>と同程度の時間分解能を得ることが可能であり、陽電子寿命測定など、高時間分解能が必要な放射線計測にも十分利用が可能である。

## 【図面の簡単な説明】

## 【0021】

【図1】実施例で用いた測定装置の配置を示す図である。

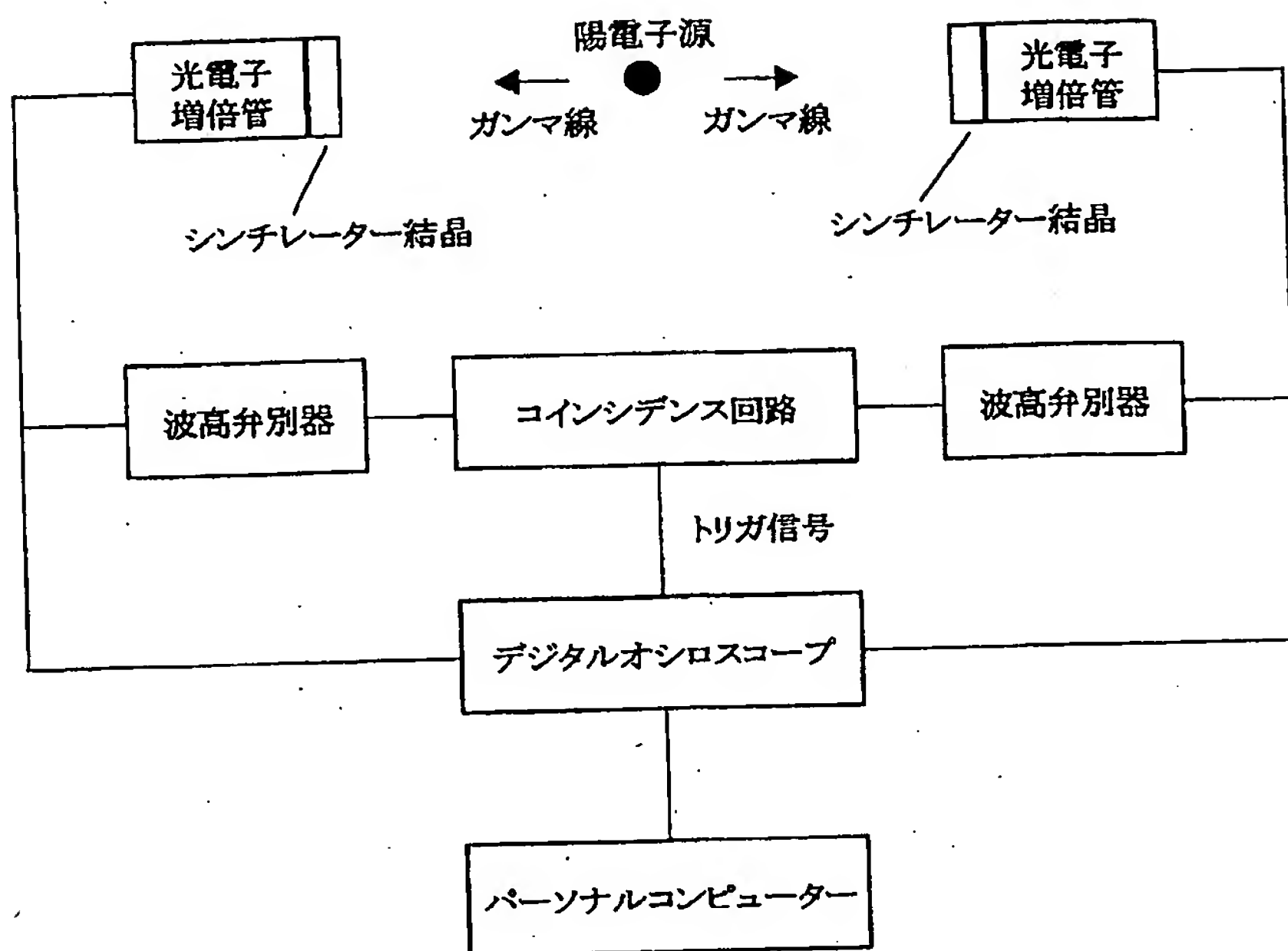
【図2】実施例1の測定結果を示す図である。横軸はチャンネル数（時間）を表し、縦軸はカウント数を表す。

【図3】BaCl<sub>2</sub>シンチレーターとBaF<sub>2</sub>シンチレーターの測定波形の立ち上がり時間を比較を示す図である。

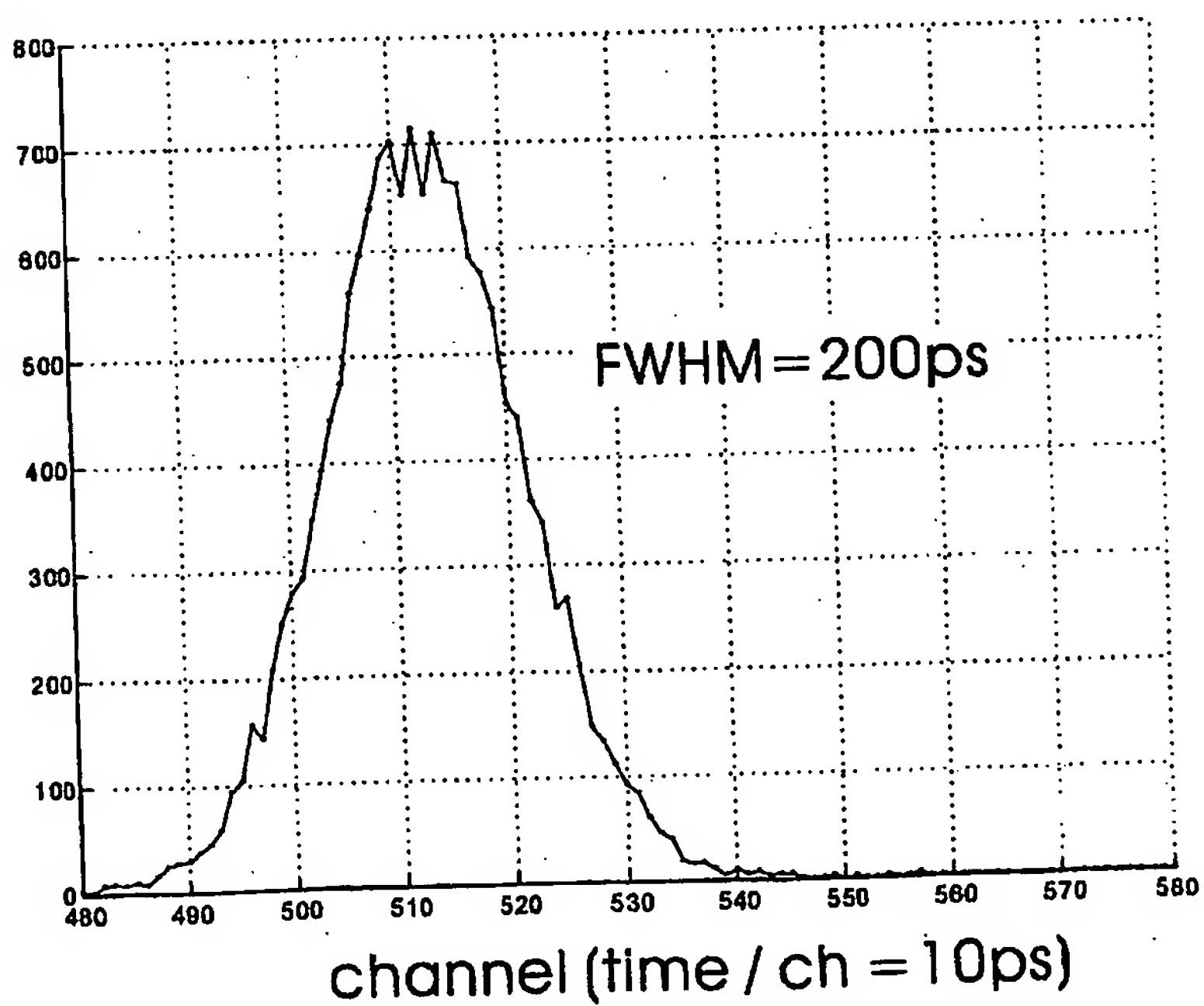
【図4】比較例1の測定結果を示す図である。



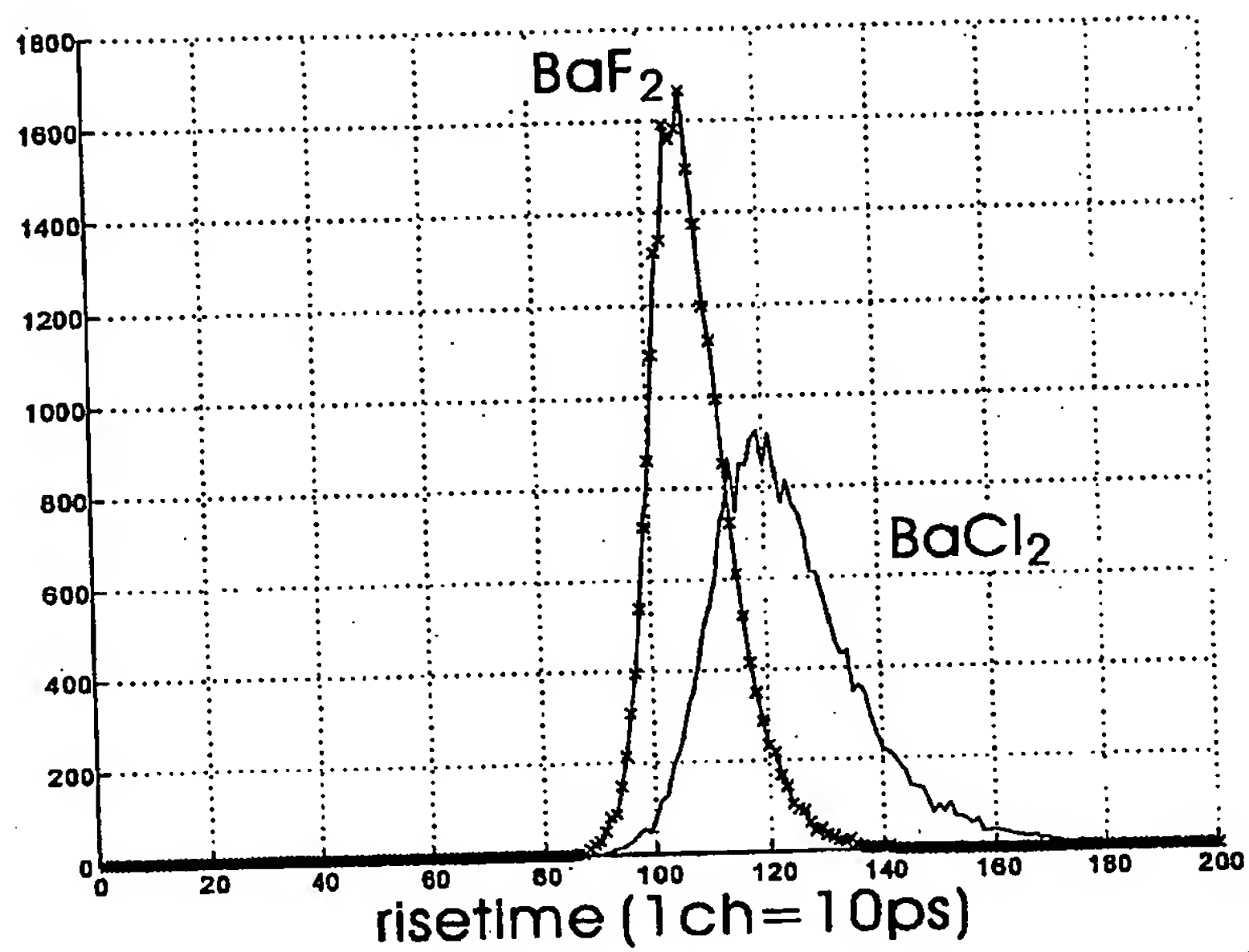
【書類名】 図面  
【図 1】



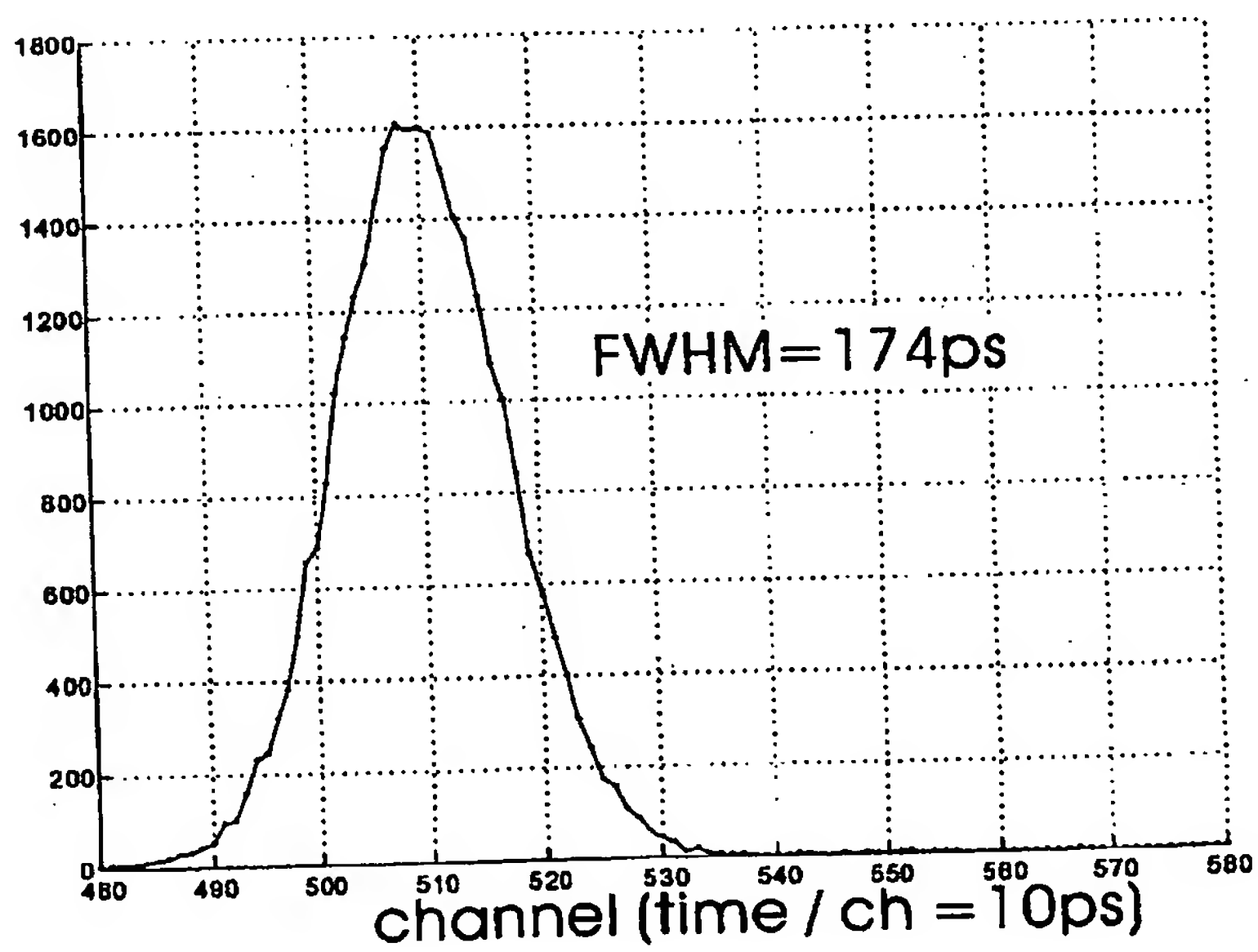
【図 2】



【図 3】



【図 4】



## 【書類名】 要約書

## 【要約】

【課題】 発光効率が高く、減衰時間が短い蛍光成分を持ち、かつその発光波長が可視光域、もしくはそれにより近いところにあるシンチレーター結晶、並びにそれを用いた高い時間分解能を持つ放射線検出装置を提供する。

【解決手段】 シンチレーター結晶として、塩化バリウム ( $\text{BaCl}_2$ ) を用いる。シンチレータとして塩化バリウム結晶を用い、シンチレータからの受光に光電子増倍管を用いた放射線検出装置であって、該シンチレータからの発光として波長が  $250 \sim 350 \text{ nm}$  の光を用い、該シンチレータを低湿度雰囲気置くことを特徴とする放射線検出装置である。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2004-010449
受付番号	50400079716
書類名	特許願
担当官	第一担当上席 0090
作成日	平成16年 1月20日

<認定情報・付加情報>  
【提出日】

平成16年 1月19日

【書類名】 手続補正書  
【整理番号】 PS04-1614  
【あて先】 特許庁長官殿  
【事件の表示】  
【出願番号】 特願2004- 10449  
【補正をする者】  
【識別番号】 503360115  
【氏名又は名称】 独立行政法人 科学技術振興機構  
【代理人】  
【識別番号】 100110249  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 下田 昭  
【手続補正1】  
【補正対象書類名】 特許願  
【補正対象項目名】 発明者  
【補正方法】 変更  
【補正の内容】  
【発明者】  
【住所又は居所】 千葉県松戸市西馬橋 2-40-21 クレージュIII105号  
室  
村上 英利  
【氏名】  
【発明者】  
【住所又は居所】 東京都府中市美好町 3-40-8  
【氏名】 澁谷 憲悟  
【発明者】  
【住所又は居所】 東京都品川区東品川 2-5-6-905  
【氏名】 斎藤 晴雄  
【発明者】  
【住所又は居所】 宮城県仙台市青葉区川内元支倉 35番地 川内住宅10-107  
【氏名】 浅井 圭介  
【発明者】  
【住所又は居所】 千葉県市川市南大野 1-45-1-316  
【氏名】 本多 庸郎  
【その他】 発明者の澁谷 憲悟の氏名を渋谷と誤記したので補正致します。

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2004-010449
受付番号	50400080835
書類名	手続補正書
担当官	鎌田 証規 8045
作成日	平成16年 2月10日

<認定情報・付加情報>

【提出日】 平成16年 1月19日



特願 2004-010449

出願人履歴情報

識別番号

[503360115]

1. 変更年月日

[変更理由]

住所

氏名

2003年10月 1日

新規登録

埼玉県川口市本町4丁目1番8号

独立行政法人 科学技術振興機構

2. 変更年月日

[変更理由]

住所

氏名

2004年 4月 1日

名称変更

埼玉県川口市本町4丁目1番8号

独立行政法人科学技術振興機構